

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-159661

(43)Date of publication of application : 13.06.2000

---

(51)Int.Cl.

A61K 9/52  
A61K 7/46  
// B01J 13/14

---

(21)Application number : 10-342954

(71)Applicant : LION CORP

(22)Date of filing : 02.12.1998

(72)Inventor : YASUE RYOJI  
HAGIWARA HIROYUKI  
TAKAGI EMI  
KIYAMA KENTAROU

---

### (54) SUSTAINED RELEASE MICROCAPSULE-CONTAINING AQUEOUS COMPOSITION

#### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a sustained release microcapsule-containing aqueous composition capable of being formed so as to have a larger diameter while retaining capsule strength required, having a wide scope for the selection of materials having functionality such as perfumery or insecticide, capable of easily controlling sustained release property and release one of a core material in each microcapsule not only before its application but also for its duration of service and capable of manifesting function desired while retaining its initial strength in the nearly same level.

**SOLUTION:** When this sustained release microcapsule-including aqueous composition is prepared by dispersing multi-core-type microcapsules in an aqueous basis and the microcapsules consist of a core material including a hydrophobic substance and a wall membrane including a polymer and water, the moisture content of the wall membrane is 50-99 wt.% and the aqueous basis includes an osmotic pressure-regulating agent in a content of 1-30 wt.% based on the weight of the whole of the composition.

---

#### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's

decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-159661

(P2000-159661A)

(43)公開日 平成12年6月13日(2000.6.13)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テマコード <sup>*</sup> (参考)
A 6 1 K 9/52		A 6 1 K 9/52	A 4 C 0 7 6
7/46		7/46	B 4 G 0 0 5
// B 0 1 J 13/14		B 0 1 J 13/02	H

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 10 頁)

(21)出願番号	特願平10-342954	(71)出願人	000006769 ライオン株式会社 東京都墨田区本所1丁目3番7号
(22)出願日	平成10年12月2日(1998.12.2)	(72)発明者	安江 良司 東京都墨田区本所1丁目3番7号 ライオン株式会社内
		(72)発明者	萩原 弘行 東京都墨田区本所1丁目3番7号 ライオン株式会社内
		(74)代理人	100079304 弁理士 小島 隆司 (外1名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 徐放性マイクロカプセル含有水性組成物

(57)【要約】

【解決手段】 疎水性物質を含有する芯物質と高分子化合物及び水を含有する壁膜とからなる多芯型構造のマイクロカプセルを水性基剤に分散させた徐放性マイクロカプセル含有水性組成物であって、上記壁膜の含水率が50～99重量%であり、且つ上記水性基剤が浸透圧調整剤を組成物全体に対して1～30重量%含有してなることを特徴とする徐放性マイクロカプセル含有水性組成物。

【効果】 必要なカプセル強度を維持したままで大径のカプセルとすることが可能で、香料、殺虫剤等の機能性を有する材料の選択の余地が広い上、使用前のみならず使用期間中に亘ってマイクロカプセルの芯物質の徐放性、放出性を容易にコントロールすることができ、上記長期間に亘って目的とする機能を初期の強さを同程度に維持したままで発現させることができる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 疎水性物質を含有する芯物質と高分子化合物及び水を含有する壁膜とからなる多芯型構造のマイクロカプセルを水性基剤に分散させた徐放性マイクロカプセル含有水性組成物であって、上記壁膜の含水率が50～99重量%であり、且つ上記水性基剤が浸透圧調整剤を組成物全体に対して1～30重量%含有してなることを特徴とする徐放性マイクロカプセル含有水性組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、特に芳香剤等として有効に用いられる徐放性マイクロカプセル含有水性組成物に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】芳香剤等に用いられるマイクロカプセルは、芯物質である芳香成分が徐々に放出され、長時間の放出が維持されることが望ましく、そのためには、マイクロカプセルを比較的大径に調製して、内部に十分量の芯物質が充填できるようにすると共に、その放出性、徐放性をコントロールすることが考えられる。

【0003】従来、比較的大径を有し、またカプセル膜が多孔状に形成されて芯物質がその細孔を通して放出するようにしたマイクロカプセルとして、特開平6-228880号、同7-11233号、同9-208406号公報に記載されたマイクロカプセルが知られているが、これらのマイクロカプセルはいずれもカプセル膜が無機質にて形成されている上、マイクロカプセルの粒径が100 $\mu$ m以下であり、それよりも大きな粒径であることが要望される芳香剤等の用途にとって十分なものではない。

【0004】更に、特表平9-507692号公報には、におい放出剤を含有するラメラ構造を有するマイクロカプセルが提案されているが、このマイクロカプセルの大きさは100 $\mu$ m以下である上に、徐放性の点でも満足するものではなかった。

【0005】また、芳香成分などを芯物質とし、この芯物質を合成高分子化合物などからなる疎水性壁膜で被覆した単芯型構造のマイクロカプセルは、通常、界面重縮合反応により調製されるが、この場合、例えば平均粒子径800 $\mu$ m以上の大径のマイクロカプセルを調製することは困難であり、仮に上記のような大径のものを調製できたとしても、そのカプセル強度が低くなって、水性ゲル中で破壊されるという問題があった。更に、界面重縮合反応によりマイクロカプセルを調製する場合、油性モノマーと反応する化合物を芯物質として使用することができないため、使用できる香料（芳香成分）等の選択の余地が狭かった。

【0006】本発明は、上記事情に鑑みなされたもの

で、マイクロカプセルからの芯物質の放出性をコントロールして、長期間に亘って芯物質の有する機能を発現させることができ、芳香剤等の用途に好適な徐放性マイクロカプセル含有水性組成物を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】本発明者は、上記目的を達成するため鋭意検討を行った結果、目的とする機能を有する疎水性物質を芯物質とし、これを含み壁膜に内包させたマイクロカプセルを調製するに際し、マイクロカプセルを多芯型構造のものとすることによって、大径のマイクロカプセルを調製することが容易となり、上記のような製造法上の材料制限が解除されて、例えば油性モノマーと反応する香料などであっても芯物質として使用することができる上に、カプセル径が大径となっても必要なカプセル強度が維持でき、芯物質の放出速度を調整することが容易となるのみならず、例えば水性ゲルの中に配合させてもカプセルが破壊され難いことから、その使用形態の応用の幅が広くなり、また、マイクロカプセルの壁膜の含水率を調整することによって、マイクロカプセルの芯物質の放出速度をコントロールできることを見出し、更に鋭意検討した結果、このようなマイクロカプセルを界面活性剤などの浸透圧調整剤を配合した水性基剤に分散させ、この浸透圧調整剤の濃度を調整することによって、マイクロカプセルの芯物質の放出速度をより効果的にコントロールできることを知見し、本発明をなすに至った。

【0008】即ち、本発明は、疎水性物質を含有する芯物質と高分子化合物及び水を含有する壁膜とからなる多芯型構造のマイクロカプセルを水性基剤に分散させた徐放性マイクロカプセル含有水性組成物であって、上記壁膜の含水率が50～99重量%であり、且つ上記水性基剤が浸透圧調整剤を組成物全体に対して1～30重量%含有してなることを特徴とする徐放性マイクロカプセル含有水性組成物を提供する。

【0009】以下、本発明につき更に詳細に説明すると、本発明の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物は、疎水性物質を含有する芯物質の粒子が多数分散した状態で所定の含水率を有する高分子含水壁膜に内包された多芯型構造のマイクロカプセルを所定量の浸透圧調整剤を含有する水性液、水性ゲル等の水性基剤に分散させたものである。

【0010】ここで、本発明のマイクロカプセルの芯物質に配合される疎水性物質としては、その種類が特に制限されるものではなく、カプセルの用途などに応じて適宜選定することができ、具体的機能としては、例えば香料、殺虫剤等に分類されるものを選択することができ、このような機能を有する化合物として、例えばエステル類、アルコール類、アルデヒド類、ケトン類、炭化水素類等の1種又は2種以上を適宜組み合わせ使用すること

とができる。

【0011】本発明の場合、これらの中でも特に香料及び香料として使用されるエステル類、アルコール類、アルデヒド類、ケトン類、炭化水素類がより好適に使用され、具体的には例えばユーカリ油、レモン油、ラベンダー油、ヒノキ油、シトラール、アレスリン、リナロール、テルペノール、リガストラール、ベンジルアセテート、エチルイソブチレート、 $\beta$ -ヨノン、ヘキシルアルコール、アニスアルデヒド、 $\alpha$ -ピネン、 $\beta$ -ピネン等を挙げることができ、これらは1種単独で又は2種以上を適宜組み合わせ使用することができる。

【0012】なお、本発明の芯物質には、本発明の効果を妨げない限り、上記疎水性物質以外にも適宜成分を配合することができ、例えば所望の機能を有する上記疎水性物質が常温で固体となる物質である場合、ジエチルフタレート、中鎖トリグリセリド、流動パラフィン等の疎水性、水不溶性又は水難溶性溶剤で液状にして芯物質として使用することが望ましい。

【0013】上記疎水性物質の配合量は、特に制限されるものではないが、通常、芯物質全体に対して20～100%（重量%、以下同様）、好ましくは30～100%とすると好適である。疎水性物質の配合量が少なすぎると機能性の疎水性物質配合の効果を十分に得ることが困難となる場合がある。

【0014】上記疎水性物質を含有する芯物質を内包する壁膜は、高分子化合物を壁膜形成物質とするものであり、高分子化合物の種類は特に制限されるものではなく、例えば常温でゲル化する水溶性高分子化合物を好適に使用することができ、具体的には、例えば種々のゼリー強度を有するゼラチン類、寒天、カラギーナン、ジェランガム、メチルセルロース、カードラン等の多糖類などを挙げることができ、これらは1種単独で又は2種以上を適宜組み合わせ使用することができる。

【0015】本発明の場合、これらの中でも、ゼラチン類、寒天、ジェランガム、カラギーナン等がより好ましく使用され、特にゼラチン類が好適に使用される。壁膜形成物質としてゼラチン類を使用する場合、後述するようにゼラチンをゲル化させてカプセル化を行った後に、アルデヒド処理を行ってゼラチン膜を硬化させ、ゼラチン硬化膜とすると、より効果的である。

【0016】上記高分子化合物の配合量は特に制限されるものではないが、通常、壁膜全体に対して0.5～50%、好ましくは1～40%、より好ましくは2～35%とすると好適である。高分子化合物の配合量が多すぎると必然的に水の配合割合が低くなって本発明において必要な壁膜の含水率を得ることができなくなり、少なすぎるとカプセル強度が低くなって、芯物質の放出性をコントロールすることが困難となる場合がある。

【0017】本発明のマイクロカプセルの壁膜は、含水率が50～99%であり、好ましくは60～98%であ

る。含水率が高すぎるとカプセル化が困難となり、低すぎると徐放性が発現しなくなる。

【0018】なお、本発明において、組成物中に含有された壁膜の含水率は、マイクロカプセル含有水性組成物中からマイクロカプセルを取り出し、軽く表面の水分を取り除いた後、カールフィッシャー（例えば平沼産業（株）製「AQUACOUNTER AQV-7」）にて測定することによって、確認することができる。

【0019】本発明の場合、上記含水壁膜には、本発明の効果を妨げない限り上記高分子化合物以外にも糖類、澱粉、蛋白質等の親水性物質を適宜量配合することができる。

【0020】本発明のマイクロカプセルは、上記芯物質からなる多数の微小粒子が分散した状態で上記壁膜に内包された多芯型構造を有するものであり、このような多芯型構造のマイクロカプセルにおける上記芯物質と上記壁膜との比率は、特に制限されるものではないが、通常、重量比で芯物質：壁膜＝1：99～50：50、特に10：90～40：60とすると好適である。芯物質の比率が大きすぎるとマイクロカプセル化が困難となる場合があり、小さすぎるとマイクロカプセル配合の効果を十分に得ることが困難となる場合がある。

【0021】本発明のマイクロカプセル中に分散する上記芯物質の粒子の平均粒子径は、特に制限されるものではないが、0.1～50 $\mu$ m、好ましくは0.1～30 $\mu$ mとすると好適である。芯物質の粒子径が大きすぎると芯物質の放出速度が速くなり、十分な徐放性を得ることが困難となる場合があり、小さすぎるとマイクロカプセルの調製が困難となる場合がある。

【0022】本発明のマイクロカプセルの平均粒子径は、特に制限されるものではないが、600 $\mu$ m以上、好ましくは800～3,000 $\mu$ m、より好ましくは800～2,000 $\mu$ mとすると好適である。マイクロカプセルの粒子径が小さすぎると内部に必要な量の芯物質を充填することが困難となる場合がある。なお、マイクロカプセルの粒子径が大きすぎると単位体積当たりの表面積が小さくなり、徐放性が悪くなる場合がある。

【0023】そして、上記芯物質からなるの粒子の平均粒子径とマイクロカプセルの平均粒子径との比率は、好ましくは芯物質粒子径：マイクロカプセル粒子径＝1：10～1：6,000、より好ましくは1：20～1：4,000である。芯物質の粒子径が大きすぎるとマイクロカプセルの強度が不十分となる場合があり、小さすぎるとマイクロカプセルの調製が困難となる場合がある。

【0024】なお、本発明の場合、芯物質からなる粒子の平均粒子径は、例えば光学顕微鏡を利用して測定したり、マイクロカプセルの平均粒子径は、例えば篩分けにて、確認することができる。

【0025】本発明の徐放性マイクロカプセル含有水性

組成物は、所定量の浸透圧調整剤を溶解させた水性液、水性ゲル等の水性基剤に上記マイクロカプセルを分散させたものであり、上記浸透圧調整剤は、その配合濃度によって水性基剤の浸透圧を調整することができる物質であれば、その種類は特に制限されず、このような浸透圧調整剤としては、疎水性物質に対する壁膜の親和性を变えて浸透圧を調整するものと、壁膜の含水率を変えて浸透圧を調整するものがあり、前者のような浸透圧調整剤として、例えば界面活性剤、一価又は二価のアルコール、多価アルコール、糖類等を挙げることができ、後者のような浸透圧調整剤として、例えば無機塩、有機酸塩等を挙げることができ、これらは1種単独で又は2種以上を適宜組み合わせ使用することができる。

【0026】上記界面活性剤としては、その種類が特に制限されるものではなく、陽イオン界面活性剤、陰イオン界面活性剤、非イオン界面活性剤、両性界面活性剤のいずれであってもよいが、本発明の場合、これらの中でも特にHLB値が7以上のものが好ましく、より好ましくは9以上である。HLB値が低すぎると水性基剤に溶解しない場合がある。なお、HLB値の上限は特にないが、実用性を考慮すれば、40以下であることが望ましい。

【0027】このようなHLB値を有する界面活性剤として、具体的には、例えばポリグリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビット脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸塩等が特に好適に使用することができる。

【0028】また、界面活性剤以外の浸透圧調整剤としては、例えばプロピレングリコール、グリセリン等の多価アルコール、塩化ナトリウム、硫酸ナトリウム（芒硝）等の無機塩、クエン酸、酢酸塩等の有機酸、ショ糖、果糖、ブドウ糖、ソルビット等の糖類、エタノール、メタノール、イソプロピルアルコール等の一価のアルコールなどが特に好適に使用することができる。

【0029】上記浸透圧調整剤の配合量は、本発明の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物全体に対して1～30%であり、好ましくは5～25%である。浸透圧調整剤の配合量が多すぎると芯物質の放出速度が速くなり過ぎて徐放性のコントロールが困難となり、少なすぎると芯物質の放出速度が遅くなり過ぎて実用性がなくなる。

【0030】本発明の水性基剤は、本発明の効果を妨げない限り、上記浸透圧調整剤以外に水溶性高分子化合物、低級アルコール類、糖類、蛋白質類、無機化合物、有機化合物等であって、浸透圧調整機能を有さない水溶

性物質を1種単独で又は2種以上を適宜組み合わせる適宜濃度となるように溶解させることができる。

【0031】また、本発明の水性基剤として、例えば水性液、水性ゲルなどを使用することができるが、本発明の場合、常温でゲル状となる水性ゲルを上記マイクロカプセルを分散させる水性基剤として使用すると、水性ゲル中にマイクロカプセルを均一分散させることができ、徐放性も良くなるので、より効果的であり、例えばゼラチン、コラーゲン等のたんぱく質、アルギン酸ナトリウム等の植物ガム、寒天、カラギーナン、ジェランガム、メチルセルロース、カードラン等の多糖類の水溶性高分子化合物を常温でゲル化可能な濃度（通常、水性基剤全体の0.1～20%、特に0.5～10%）で溶解させると好適である。

【0032】本発明の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物における上記マイクロカプセルと上記水性基剤との配合比は、特に制限されるものではないが、通常、重量比でマイクロカプセル：水性基剤＝70：30～0.1：99.9、特に50：50～1：99となるように上記マイクロカプセルを上記水性基剤に分散させると好適である。マイクロカプセルの配合比が低すぎるとマイクロカプセル配合の効果を得ることが困難となる場合があり、高すぎると芯物質の放出速度をコントロールすることが困難となる場合がある。

【0033】なお、同様の理由により上記芯物質と水性基剤との配合割合は、重量比で芯物質：水性基剤＝1：50～1：400とすると好適である。

【0034】本発明の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物に配合される上記マイクロカプセルの調製方法は、特に制限されるものではなく、疎水性物質を芯物質とする多芯型構造のマイクロカプセルの調製方法として公知の方法を採用することができ、例えば以下に示す方法により効率良く製造することができる。

【0035】即ち、マイクロカプセルの壁膜を形成する上記高分子化合物を所定量の水に溶解して水相とし、これに上記疎水性物質を含有する芯物質となる油相を分散させて、O（芯物質）／W（壁膜）型乳化物を調製するか、上記水相全体の50～80%の水相と上記油相とでW／O型乳化物を形成した後、残りの水相を添加し、転相乳化させてO（芯物質）／W（壁膜）型乳化物を調製する。

【0036】ここで、上記乳化物を調製する際の攪拌には、ホモミキサー、ニーダー、マイルダー等が使用されるが、芯物質（油相）を短時間で好ましい粒径で分散させることを考慮すれば、これらの中でも特にホモミキサーが好ましく、その回転数、回転時間によって疎水性物質を含有する芯物質からなる油滴粒子径を調整することによって、本発明のマイクロカプセルの芯物質を上記のような好適な粒子径に調整することができる。

【0037】なお、温度条件としては、特に制限され

ず、例えば常温で乳化させることもできるが、上記水性高分子化合物が固化（ゲル化）する温度領域を避けて乳化させることが望ましい。

【0038】次に、このO/W型乳化物の水相によってマイクロカプセル膜（壁膜）を形成する方法としては、公知の造粒方法を採用することができるが、本発明の場合、特に液中硬化法又はスプレークーリング法が好適である。

【0039】ここで、液中硬化法とは、油脂等の分散媒中でO/W型乳化物の粒子を硬化後、分散媒を分離除去することによりマイクロカプセルを得る方法である。具体的には、上記O/W型乳化物を200～1000%の食用油脂等の液状油脂中に上記高分子化合物がゲル化しない温度領域で分散させてO（芯物質）/W（壁膜）/O型乳化物を調製した後、全体を冷却して上記壁膜を固化させた後、濾過などにより液状油脂を除去し、更に、エチルアルコール、ヘキサン、石油エーテル等を用いてマイクロカプセルに付着した液状油脂を除去してマイクロカプセル粒子を製造する方法である。

【0040】なお、上記O/W/O型乳化物を調製する際の攪拌にも、パドルやプロペラ等の攪拌翼を使用すると好適であり、その回転数、回転時間によって上記O/W型乳化物の分散粒子の粒子径を調整することによって、本発明のマイクロカプセルを上記のような好適な粒子径に調整することができる。

【0041】次に、スプレークーリング法とは、上記O/W型乳化物を噴霧又は滴下し、水相を固化させた後、捕集することによりマイクロカプセルを得る方法である。具体的には、上記O/W型乳化物を上記高分子化合物がゲル化しない温度領域の温度雰囲気に設定した塔中に、ゲル化しない温度状態のO/W型乳化物を回転円盤式ノズルや二流体加圧ノズルなどを用い、必要に応じて流量やノズル口径等により噴霧又は滴下される粒子の大きさを調整しながら噴霧又は滴下することによって上記壁膜を固化させた後、マイクロカプセル粒子を捕集する方法である。

【0042】なお、上述したようにゼラチン硬化膜を壁膜として使用する場合、その調製方法は特に制限されるものではないが、上記芯物質を内包するゼラチン壁膜を形成した後、公知のゼラチンのアルデヒド処理又は酵素処理を行ってゼラチン膜を硬化させると好適である。

【0043】本発明のマイクロカプセル含有水性組成物は、上記のようにして製造されたマイクロカプセルを予め上記必須成分及び任意成分を水に溶解させておいた水性基剤に均一に分散させることによって製造することができる。なお、水性基剤を調製する際、配合成分に合わせて適宜加温することが好ましく、また、上記マイクロカプセルを分散させる際にも、必要に応じて適宜温度にコントロールすることが望ましく、例えば水性基剤が常温でゲル状となるものであれば、そのゲル化温度領域を

超え、且つマイクロカプセル壁膜のゲル化温度領域内となるような温度で上記マイクロカプセルを水性基剤中に均一分散させた後、例えば密閉容器に充填して室温まで冷却することが望ましい。

【0044】このようにして製造された本発明の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物の使用方法は、特に制限されるものではないが、通常、蓋付き容器等の密閉可能な容器に充填し、使用時まで蓋を閉めるなどして密閉した状態で保存しておき、使用時に蓋を開けるなどにして、マイクロカプセル含有水性組成物を外気に接触させることによって、芯物質を徐々に放出させることができる。

【0045】ここで、本発明の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物の場合、疎水性物質を含有する芯物質が含水率の高い含水壁膜で内包され、このマイクロカプセルが水性基剤に分散されているので徐放性に優れるのみならず、この壁膜の含水率を所定範囲内で高くすることによって芯物質の放出速度を遅めたり、含水率を低くすることによって芯物質の放出速度を速めたりするというように、芯物質の放出速度をコントロールすることができ、更に、水性基剤中の浸透圧調整剤の濃度を所定範囲内で調整することによって、同様に芯物質の放出速度をコントロールできるのみならず、上述したように長時間に亘って放出されるのに十分な量の芯物質をマイクロカプセル中に内包させることができるので、長期間に亘って上記疎水性物質が有する機能を発揮させることができ、また、その期間をコントロールすることもできる。

【0046】そして、従来の徐放性マイクロカプセル剤であれば、疎水性物質を含有する芯物質が徐々に放出されて、その残存率が低くなるに従って、その放出性が悪くなり、疎水性物質により発揮される機能の程度が弱くなっていくが、本発明の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物の場合、外気に触れることによって、マイクロカプセルの含水壁膜中の水分及び上記水性基剤中の水分が徐々に蒸発していき、壁膜の含水率が低くなると共に、水性基剤中の浸透圧調整剤の濃度が高くなってマイクロカプセルが分散された水性基剤の浸透圧が高くなるので、時間が経過して疎水性物質の残存量が少なくなるに従って、芯物質が放出され易くなるので、疎水性物質の有する機能を長期間に亘って使用開始時の同程度の強さで発揮させることができる。

【0047】従って、本発明のマイクロカプセル含有水性組成物は、各種香料を疎水性物質として使用した場合、芳香剤等のフレグランス製品、殺虫成分や誘引剤、忌避剤、殺菌剤、除草剤などを疎水性物質とした場合、農薬や殺虫剤などの用途に有効に用いることができる。

【0048】

【発明の効果】本発明のマイクロカプセル含有水性組成物によれば、必要なカプセル強度を維持したままで大径のカプセルとすることが可能であり、また、香料、殺虫

剤等の機能性を有する材料の選択の余地が広い上、使用前のみならず使用期間中に亘ってマイクロカプセルの芯物質の徐放性、放出性を容易にコントロールすることができるので、上記長期間に亘って目的とする機能を初期の強さを同程度に維持したままで発現させることができる。

【0049】従って、本発明の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物は、芳香剤等のフレグランス製品、農薬や殺虫剤などとして特に有用である。

【0050】

【実施例】以下、実施例及び比較例を示して本発明を具体的に説明するが、本発明は下記実施例に制限されるものではない。

【0051】【実施例1】壁膜形成物質としてゼリー強度300#のゼラチン〔新田ゼラチン(株)製〕18重量部を精製水72重量部に60℃で溶解させた後、ホモミキサーを備えた撹拌槽に移してユーカリ油10重量部を添加し、60℃で7000rpm、2分間ホモミキサーにより乳化して、ユーカリ油の平均粒子径が2μmに調整されたO/W型乳化物を得た。

【0052】このO/W型乳化物100重量部を60℃に維持したまま、予め50℃に加熱しておいたコーン油250重量部に添加し、50℃で300rpm、3分間プロペラ羽根により撹拌することによって、上記O/W型乳化物をコーン油中に分散させると共に、上記乳化物の平均粒子径を800μmに調整した後、10℃まで冷却してゼラチンをゲル化させ、上記O/W型乳化物をカプセル化した。その後、コーン油中に分散した上記カプセルを石油エーテルで過剰洗浄し、次いで1%のグルタルアルデヒド水溶液200重量部中に分散させてゼラチンカプセル(壁膜)の硬化を行ってユーカリ油を芯物質とし、ゼラチン硬化膜を含水壁膜とする多芯型構造のマイクロカプセルを得た。

【0053】次に、精製水83重量部にカラギーナン2重量部を分散させ、80℃まで加温してカラギーナンを溶解させた後、65℃まで冷却してノニルフェノール系界面活性剤NC-200(HLB15.8)〔ライオン(株)製〕10重量部、上記マイクロカプセル5重量部を添加し、65℃で全体が均一になるように撹拌して実施例1の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物を得、これを密閉容器に充填して放冷した。

【0054】【実施例2】壁膜形成物質としてゼリー強度200#のゼラチン〔新田ゼラチン(株)製〕28重量部を精製水52重量部に60℃で溶解させた後、ホモミキサーを備えた撹拌槽に移してレモン油20重量部を添加し、60℃で9000rpm、3分間ホモミキサーにより乳化してレモン油の粒子径が0.5μmに調整されたO/W型乳化物を得た。

【0055】このO/W型乳化物100重量部を60℃に維持したまま、予め50℃に加熱しておいたコーン油

250重量部に添加し、50℃で350rpm、3分間プロペラ羽根により撹拌することによって、上記O/W型乳化物をコーン油中に分散させると共に、上記乳化物の平均粒子径を600μmに調整した後、10℃まで冷却してゼラチンをゲル化させ、上記O/W型乳化物をカプセル化した。その後、コーン油中に分散した上記カプセルを石油エーテルで過剰洗浄し、次いで1%のグルタルアルデヒド水溶液200重量部中に分散させてゼラチンカプセル(壁膜)の硬化を行ってレモン油を芯物質とし、ゼラチン硬化膜を含水壁膜とする多芯型構造のマイクロカプセルを得た。

【0056】次に、精製水65重量部にカラギーナン1重量部を分散させ、80℃まで加温してカラギーナンを溶解させた後、65℃まで冷却してノニルフェノール系界面活性剤NC-86(HLB12.6)〔ライオン(株)製〕30重量部、上記マイクロカプセル4重量部を添加して65℃で全体が均一になるように撹拌して実施例2の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物を得、これを密閉容器に充填して放冷した。

【0057】【実施例3】壁膜形成物質としてゼリー強度250#のゼラチン〔新田ゼラチン(株)製〕21.25重量部を精製水63.75重量部に60℃で溶解させた後、ホモミキサーを備えた撹拌槽に移してラベンダー油15重量部を添加し、60℃で4000rpm、1分間ホモミキサーにより乳化して、ラベンダー油の粒子径が20μmに調整されたO/W型乳化物を得た。

【0058】このO/W型乳化物100重量部を60℃に維持したまま、予め50℃に加熱しておいたコーン油250重量部に添加し、50℃で200rpm、3分間平羽根タービンにより撹拌することによって、上記O/W型乳化物をコーン油中に分散させると共に、上記乳化物の粒子径を900μmに調整した後、10℃まで冷却してゼラチンをゲル化させ、上記O/W型乳化物をカプセル化した。その後、コーン油中に分散した上記カプセルを石油エーテルで過剰洗浄し、次いで1%のグルタルアルデヒド水溶液200重量部中に分散させてゼラチンカプセル(壁膜)の硬化を行ってラベンダー油を芯物質とし、ゼラチン硬化膜を含水壁膜とする多芯型構造のマイクロカプセルを得た。

【0059】次に、精製水80重量部にジェランガム1重量部を分散させ、80℃まで加温してジェランガムを溶解させた後、65℃まで冷却してノニルフェノール系界面活性剤NC-100(HLB13.3)〔ライオン(株)製〕15重量部、上記マイクロカプセル4重量部を添加し、65℃で全体が均一になるように撹拌して実施例3の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物を得、これを密閉容器に充填して放冷した。

【0060】【実施例4】壁膜形成物質としてジェランガム〔大日本製薬(株)製〕4.5重量部を精製水85.5重量部に80℃で溶解させた後、ホモミキサーを



備えた攪拌槽に移してヒノキ油10重量部を添加し、80℃で7000rpm、1分間ホモミキサーにより乳化してヒノキ油の粒子径が5 $\mu$ mに調整されたO/W型乳化物を得た。

【0061】このO/W型乳化物100重量部を80℃に維持したまま、予め50℃に加熱しておいたコーン油250重量部に添加し、50℃で300rpm、4分間プロペラ羽根により攪拌することによって、上記O/W型乳化物をコーン油中に分散させると共に、上記乳化物の粒子径を750 $\mu$ mに調整した後、10℃まで冷却してジェランガムをゲル化させ、上記O/W型乳化物をカプセル化した。その後、コーン油中に分散した上記カプセルを石油エーテルで過洗浄してヒノキ油を芯物質とし、ジェランガム膜を含水壁膜とする多芯型構造のマイクロカプセルを得た。

【0062】次に、精製水90重量部にノニルフェノール系界面活性剤NC-150 (HLB14.9) [ライオン(株)製] 5重量部、カプセル5重量部を添加して、30℃で全体が均一になるように攪拌して実施例4の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物を得、これを密閉容器に充填して放冷した。

【0063】[実施例5] 壁膜形成物質として寒天[伊那食品工業(株)製 UP-6] 1.8重量部を精製水88.2重量部に90℃で溶解させた後、ホモミキサーを備えた攪拌槽に移してシトラール10重量部を添加し、70℃で8000rpm、2分間ホモミキサーにより乳化して、シトラールの粒子径が1 $\mu$ mに調整されたO/W型乳化物を得た。

【0064】このO/W型乳化物100重量部を70℃に維持したまま、予め70℃に加熱しておいたコーン油250重量部に添加し、70℃で200rpm、3分間平羽根タービンで攪拌することによって、上記O/W型乳化物をコーン油中に分散させると共に、上記乳化物の粒子径を900 $\mu$ mに調整した後、20℃まで冷却して寒天をゲル化させ、上記O/W型乳化物をカプセル化した。その後、コーン油中に分散した上記カプセルを石油エーテルで過洗浄し、シトラールを芯物質とし、寒天膜を含水壁膜とする多芯型構造のマイクロカプセルを得た。なお、シトラールは、油性モノマーと反応するために、例えば多価アミンと多価酸クロライドを用いて界面重合反応によりマイクロカプセル化する場合に、芯物質として使用することができなかったものである。

【0065】次に、精製水94.5重量部にキサンタンガム0.5重量部を分散させ、40℃まで加温してキサンタンガムを溶解させた後、デカグリセリルモノラウレート (HLB15.5) [商品名「Decaglyn 1-L」; 日光ケミカルズ(株)製] 1重量部、カプセル4重量部を添加して40℃で全体が均一になるように攪拌して実施例5の徐放性マイクロカプセル含有水性組

成物を得、これを密閉容器に充填して放冷した。

【0066】[実施例6] 壁膜形成物質としてゼリー強度200#のゼラチン[新田ゼラチン(株)製] 20重量部と寒天[伊那食品工業(株)製 UP-6] 1.25重量部とを精製水63.75重量部に90℃で溶解させた後、ホモミキサーを備えた攪拌槽に移し、アレスリン15重量部を添加して、70℃で5000rpm、2分間ホモミキサーにより乳化して、アレスリンの平均粒子径が15 $\mu$ mに調整されたO/W型乳化物を得た。

【0067】このO/W型乳化物100重量部を70℃に維持したまま、予め70℃に加熱しておいたコーン油250重量部に添加し、70℃で200rpm、4分間平羽根タービンにより攪拌することによって、上記O/W型乳化物をコーン油中に分散させると共に、上記乳化物の平均粒子径を850 $\mu$ mに調整した後、10℃まで冷却してゼラチン及び寒天をゲル化させ、上記O/W型乳化物をカプセル化した。その後、コーン油中に分散した上記カプセルを石油エーテルで過洗浄し、次いで1%のグルタルアルデヒド水溶液200重量部中に分散させ、ゼラチン/寒天カプセル(壁膜)の硬化を行ってアレスリンを芯物質とし、ゼラチン/寒天硬化膜を含水壁膜とする多芯型構造のマイクロカプセルを得た。

【0068】次に、精製水93.8重量部にアルギン酸ナトリウム0.2重量部を分散させ、40℃まで加温してアルギン酸ナトリウムを溶解させた後、ラウリル硫酸ナトリウム (HLB40) [関東化学(株)製] 1重量部、上記マイクロカプセル5重量部を添加して、40℃で全体が均一となるように攪拌して実施例6の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物を得、これを密閉容器に充填して放冷した。

【0069】[実施例7] 壁膜形成物質としてゼリー強度300#のゼラチン[新田ゼラチン(株)製] 18重量部を精製水72重量部に60℃で溶解させた後、ホモミキサーを備えた攪拌槽に移してユーカリ油10重量部を添加し、60℃で7000rpm、2分間ホモミキサーにより乳化して、ユーカリ油の平均粒子径が2 $\mu$ mに調整されたO/W型乳化物を得た。

【0070】このO/W型乳化物100重量部を60℃に維持したまま、予め50℃に加熱しておいたコーン油250重量部に添加し、50℃で300rpm、3分間プロペラ羽根により攪拌することによって、上記O/W型乳化物をコーン油中に分散させると共に、上記乳化物の平均粒子径を800 $\mu$ mに調整した後、10℃まで冷却してゼラチンをゲル化させ、上記O/W型乳化物をカプセル化した。その後、コーン油中に分散した上記カプセルを石油エーテルで過洗浄し、次いで1%のグルタルアルデヒド水溶液200重量部中に分散させてゼラチンカプセル(壁膜)の硬化を行ってユーカリ油を芯物質とし、ゼラチン硬化膜を含水壁膜とする多芯型構造のマイクロカプセルを得た。

【0071】次に、精製水87重量部に硫酸ナトリウム8重量部を溶解させた後、上記マイクロカプセル5重量部を添加し、30℃で全体が均一になるように攪拌して実施例7の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物を得、これを密閉容器に充填して放冷した。

【0072】〔比較例1〕壁膜形成物質としてゼリー強度300#のゼラチン〔新田ゼラチン(株)製〕34重量部を精製水51重量部に60℃で溶解させた後、ホモミキサーを備えた攪拌槽に移してラベンダー油15重量部を添加し、60℃で4000rpm、1分間ホモミキサーにより乳化して、ラベンダー油の平均粒子径が20μmに調整されたO/W型乳化物を得た。

【0073】このO/W型乳化物100重量部を60℃に維持したまま、予め50℃に加熱しておいたコーン油250重量部中に添加し、50℃で250rpm、3分間プロペラ羽根により攪拌することによって、上記O/W型乳化物をコーン油中に分散させると共に、上記乳化物の平均粒子径を900μmに調整した後、10℃まで冷却してゼラチンをゲル化させ、上記O/W型乳化物をカプセル化した。その後、コーン油中に分散した上記カプセルを石油エーテルで過洗浄し、更に1%のグルタルアルデヒド水溶液200重量部中に分散させ、ゼラチンカプセル(壁膜)の硬化を行ってラベンダー油を芯物質とし、ゼラチン硬化膜を含水壁膜とする多芯型構造のマイクロカプセルを得た。

【0074】次に、精製水94.5重量部にジェランガム1重量部を分散させ、80℃まで加温してジェランガムを溶解させた後、65℃まで冷却してノニルフェノール系界面活性剤NC-100(HLB13.3)〔ライオン(株)製〕0.5重量部、上記マイクロカプセル4重量部を添加して、65℃で全体が均一となるように攪拌して比較例1の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物を得、これを密閉容器に充填して放冷した。

【0075】〔比較例2〕壁膜形成物質として寒天〔伊那食品工業(株)製UP-6〕0.4重量部を精製水79.6重量部に90℃で溶解させた後、ホモミキサーを備えた攪拌槽に移し、レモン油20重量部を添加して、70℃で9000rpm、3分間ホモミキサーにより乳化し、レモン油の平均粒子径が0.5μmに調整されたO/W型乳化物を得た。

【0076】このO/W型乳化物100重量部を70℃に維持したまま、予め70℃に加熱しておいたコーン油250重量部中に添加し、70℃で350rpm、3分間プロペラ羽根により攪拌することによって、上記O/W型乳化物をコーン油中に分散させると共に、上記乳化物の粒子径を600μmに調整した後、10℃まで冷却して寒天をゲル化させ、上記O/W型乳化物をカプセル化した。その後、コーン油中に分散した上記カプセルを石油エーテルで過洗浄して、レモン油を芯物質とし、寒天膜を含水壁膜とする多芯型構造のマイクロカプセルを得た。

【0077】次に、精製水70重量部にカラギーナン1重量部を分散させ、80℃まで加温してカラギーナンを溶解させた後、65℃まで冷却してノニルフェノール系界面活性剤NC-86(HLB12.6)〔ライオン(株)製〕25重量部、上記マイクロカプセル4重量部を添加して、65℃で全体が均一となるように攪拌して比較例2の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物を得、これを密閉容器に充填して放冷した。

【0078】上記実施例1～7及び比較例1, 2の徐放性マイクロカプセル含有水性組成物を上記容器のフタを開けた状態で室内(24～26℃)に2週間放置した後、これらの香気の強さを50人の健康成人男子をパネルとして下記評価基準に従って官能評価し、人数が一番多い評点を評価点とした。結果を表1及び表2に示す。なお、表中の含水率は、カールフィッシャー(平沼産業(株)製「AQUACOUNTER AQV-7」)にて測定し、確認した。また、表中の芯物質(平均)粒子径は、光学顕微鏡写真より測定(100個の平均)し、カプセル径(平均粒子径)は篩分けにて、確認した。

#### <評価基準>

評点	官能評価
5点	非常によい香気
4点	よい香気
3点	普通
2点	香気がやや強い
1点	香気が弱い

【0079】

【表1】

			実 施 例						
			1	2	3	4	5	6	7
マイクロカプセル	含水壁膜	高分子化合物(種類)	300#ゼラチン	200#ゼラチン	250#ゼラチン	シ・エラ・ンカ・ム	寒天	ゼラチン-寒天	300#ゼラチン
		量(重量部)	18	28	21.25	4.5	1.8	21.25	18
		精製水(重量部)	72	52	63.75	85.5	88.2	63.75	72
		含水率(重量%)	80	65	75	95	98	75	80
	芯物質	疎水性物質(種類)	エチル油	レモン油	パルミチン油	ヒノキ油	シトラール	アレスリ	エチル油
		量(重量部)	10	20	15	10	10	15	10
	攪拌	回転数(rpm)	7000	9000	4000	7000	8000	5000	7000
		時間(分)	2	3	1	1	2	2	2
	芯物質粒子径(μm)		2	0.5	20	5	1	15	2
	カプセル径(μm)		800	600	900	750	900	850	800
水性基剤	水溶性物質	高分子化合物(種類)	カラキ・ナン	カラキ・ナン	シ・エラ・ンカ・ム	-	キサンタ・ンカ・ム	アルキル・ンカ・ム	-
		量(重量部)	2	1	1	0	0.5	0.2	0
	精製水	量(重量部)	83	65	80	90	94.5	93.8	87
	浸透圧調整剤	界面活性剤・無機塩(種類)	NC-200	NC-86	NC-100	NC-150	Deca glyn 1-L	SDS	硫酸ナトリウム
		HLB	15.8	12.6	13.3	14.9	15.5	40	
		量(重量部)	10	30	15	5	1	1	8
	pH調整剤(重量部)		5	4	4	5	4	5	5
	香 気 評 価		5	4	5	4	4	5	4

【0080】

【表2】

			比較例	
			1	2
マイ ク ロ カ プ セ ル	含水壁膜	高分子化合物 (種類)	300# ゼラチン	寒天
		量 (重量部)	34	0.4
		浸透水量 (重量部)	51	79.6
		含水率 (重量%)	60	99.5
	芯物質	疎水性物質 (種類)	ラベンダ ー油	メントール
		量 (重量部)	15	20
	攪拌	回転数 (rpm)	4000	9000
		時間 (分)	1	3
	芯物質粒子径 (μm)		20	0.5
	カプセル径 (μm)		900	600
水 性 基 剤	水溶性 物質	高分子化合物 (種類)	シエラン カーン	カラキーン ン
		量 (重量部)	1	1
	精製水	量 (重量部)	94.5	70
	浸透圧 調整剤	界面活性剤 (種類)	NC- 100	NC- 86
		H L B	13.3	12.6
		量 (重量部)	0.5	25
カプセル配合量 (重量部)			4	4
香 気 評 価			1	1

フロントページの続き

(72)発明者 高木 絵美  
東京都墨田区本所1丁目3番7号 ライ  
オン株式会社内  
(72)発明者 貴山 健太郎  
東京都墨田区本所1丁目3番7号 ライ  
オン株式会社内

Fターム(参考) 4C076 AA61 AA94 DD04 DD08 EE30  
EE36 EE42 FF31  
4G005 AA01 AB09 AB14 AB25 AB27  
BA11 BB06 BB12 BB13 DA09Z  
DB01W DB01X DB06Z DB12W  
DB12Z DB17Z DC07W DC12W  
DC12X DC16W DC26W EA03  
EA05